

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平3-205439

⑬ Int. Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	⑭ 公開 平成3年(1991)9月6日
C 08 L 23/10	LCE	7107-4J	
23/16	LCY	7107-4J	
// C 08 F 2/00	MAF	7107-4J	
4/854	MEG	8016-4J	
210/02	MJN	7167-4J	

審査請求 未請求 請求項の数 8 (全7頁)

⑮ 発明の名称 塑弾性ポリプロピレン組成物

⑯ 特 願 平2-115717

⑰ 出 願 平2(1990)5月1日

優先権主張 ⑱ 1989年4月28日 ⑲ イタリア(IT) ⑳ 20328 A/89

⑳ 発 明 者 ジュリアーノ、チエキ イタリア国フェララ、ピア、ウーゴ、フォスコロ、2
ン

㉑ 発 明 者 フロリアノ、ググリエ イタリア国フェララ、ピア、アエロポルト、96
ルモ

㉒ 出 願 人 ハイモント、インコー アメリカ合衆国デラウェア州、ニューカッスル、カウンテ
ポーテツド ー、センタービル、ロード、2801

㉓ 代 理 人 弁理士 佐藤 一雄 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

塑弾性ポリプロピレン組成物

2. 特許請求の範囲

1. (A) アイソタクチック指数が90を上回るホモポリマーポリプロピレンであるか、またはエチレンおよび/またはオレフィン $\text{CH}_2=\text{CHR}$ (但し、Rは2～6個の炭素原子を有するアルキル基) との結晶性プロピレンコポリマーであって、88重量%を上回るプロピレンを含み、アイソタクチック指数が85を上回るものを10～80重量部、(B) エチレンを含み、室温でキシレンに不溶性である結晶性ポリマー成分を10～40重量部、および(C) 所望により少量のジエンを含み、室温でキシレンに可溶性であり且つエチレンを40～70重量%含む非品質のエチレン-プロピレンコポリマー成分を80～80重量部、を有して成るポリプロピレン組成物であって、曲

げ弾性率が700 Mpa未満であり、75%での残留伸びが80%未満であり、引張応力が6 Mpaを上回り且つノッチ付アイゾットレジリエンスが-20℃および-40℃で600 J/mを上回る組成物。

2. 重合したエチレンの総含量が20～80重量%である、請求項1に記載の組成物。

3. 曲げ弾性率が200～500 Mpaであり、残留伸びが20～50%であり且つ引張応力が8～20 Mpaである、請求項1および2のいずれか1項に記載の組成物。

4. 平均直径が500～7000 μmであり、流動性が80秒未満であり且つ充填した嵩密度が0.4 g/ccを上回る長球状粒子の形態である、請求項1に記載の組成物。

5. プロピレン、またはそれとエチレンおよび/またはα-オレフィンとの混合物からポリマー相(A)を形成する重合段階と、所望によりジエンを含むエチレン-プロピレン混合物からポリマー相(B)および(C)を形成する1段階以上の重合段階とから成り、トリアルキルアルミニウム化合

物と、無水塩化マグネシウム上に担持されたTiのハロゲン化物またはTiのハロゲン-アルコラートおよび電子供与体化合物を含んで成る固体成分とから得られる触媒を用いる請求項1に記載の組成物の製造方法であって、前記の固体成分は表面積が100 m²/g未満であり、多孔度が0.2~0.4 cc/gであり、80%を上回る孔の半径が100 Åを上回るような細孔容積分布を有し、且つX線スペクトルが2θ角88.5°~85°でハロが最大強度となり、2θが14.85°では反射を示さないことを特徴とする方法。

6. ポリプロピレン重合段階は液状モノマー中で行ない、1段階以上のエチレン-プロピレン共重合段階は気相中で行なう、請求項5に記載の方法。

7. 気相中で行なう、請求項5に記載の方法。

8. 請求項1の組成物から得られる製品。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、エラストマー性を有し、長球状粒子

の形態で得られ、特定の流動性および見掛密度特性を賦与された熱可塑性ポリプロピレン組成物、およびその製造方法に関する。

この数年の間に、エラストマー性を有ししかも熱可塑性材料に通常用いられる装置および方法を用いて製品に変換する能力を保持しているポリプロピレン組成物は、ますます重要なものになってきている。

前記の組成物は、ポリオレフィン熱可塑性エラストマーと呼ばれることがあり、特に自動車、電気ケーブルおよびスポーツ用品の分野において用途が見出だされている。その有利な性能ゆえに、更に高価な熱可塑性スチレンやブタジエンを基材とするゴムに取って代わろうとしている。

これらの組成物は、動的加硫条件下で、エチレン-プロピレンゴム(EPR)またはエチレン-プロピレン-ジエンゴム(BPDM)を結晶性ポリオレフィン、特にポリプロピレンと混合することによって製造される。

このような製造方法は、かなりのエネルギーを

- 3 -

必要とし、成分の機械的均一性は、最終製品に対して最適特性の望ましい釣合いを必ずしも付与するものではない。

したがって、弾性の望ましい釣合いを有するポリオレフィン組成物を重合法によって製造することが必要になってきている。

弾性を有するポリマー製品を直接重合相で製造する方法は、米国特許第4,298,721号明細書に記載されている。

前記の特許明細書に記載の熱可塑性エラストマーは、エチレン-プロピレン混合物をハロゲン化マグネシウム上に担持された特殊な触媒を用いて重合させることによって得られる。この方法で得られるコポリマーは、弾性を有するが、融点が比較的低いので(約100~130℃)、耐熱性ではない。

米国特許第4,488,185号明細書には、ポリオレフィン熱可塑性エラストマーをハロゲン化マグネシウム上に担持された立体特異性触媒を用いる2段階の重合で製造する方法について記載しており、

- 4 -

第一段階では、ホモポリマーポリプロピレンを形成し、第二段階では、好ましくは気相中で行なって、エラストマー性のエチレン/プロピレンコポリマーを形成する。

粒子の凝集を防止するために、第二段階の温度は、比較的低く(80℃未満)保つ。ポリマーは、粉末の形態で得られる。

ゴムコポリマー形成段階において比較的低い温度で行なわなければならないことは、熱交換並びに触媒の生産性が低いという観点からこの方法を不利にする。特許明細書に示されたデータによれば、組成物は、室温でキシレンに不溶性のエチレンポリマー性成分を含んでいない。

米国特許第4,491,882号明細書には、2段階でポリプロピレン熱可塑性エラストマーを製造する方法を記載しており、第一段階でプロピレンを重合させてホモポリマーポリプロピレンにし、第二段階でエチレン-プロピレン混合物を重合させてゴム状コポリマーを形成する。第二段階は、溶媒の存在下、温度80℃~80℃で行なう。この温度で

- 5 -

- 6 -

行なうと、後で砕解を必要とする塊の形成を伴って、ゴム状コポリマーが部分的に溶解する。特許明細 によれば、砕解は、 砕によって行なう。実際には、ゴム状エチレン-プロピレンコポリマーの百分率が全ポリマーの約20%を上回る場合、立体特異性触媒の存在下で操作を行なったとしても、粒子の凝集を避けることは不可能であることが知られている（公開欧州特許出願第0029851号明細書およびベルギー国特許第878.418号明細書を参照されたい）。

凝集現象は、エチレン-プロピレン共重合段階が気相中で行なわれる場合に特に重大である。反応器の汚れは、実際に気相中での方法を行なう妨げになる。

塩化マグネシウム上に担持された特定の触媒を用いると、気相中の方法でも、弾塑性特性を有するポリプロピレン組成物を、十分に高い流動性および高密度特性を有する長球状粒子の形態で、しかもあらかじめ粗砕操作をしておくことなく製品に変換する通常の方法と同様に用いることができ

るような組成物を得ることが可能であるということ意外にも見出した。

この組成物は、その弾塑性特性の結果として、従来の熱可塑性ポリオレフィンエラストマーについて考えられる全ての用途に好適である。

更に、この組成物は、形成するゴム相がポリプロピレンマトリックスに均等に分布する条件下で得られるので、成分を機械的に混合することによって得られる相当する組成物よりも優れた特性を与える。

また、組成物は、極めて高い活性触媒を用いて得られるので、前記の組成物中に残留する触媒の量は極めて少なく、触媒残留物を除去する必要がない。

本発明の組成物は、下記を有する。

(A) アイソタクチック指数が90を上回り、好ましくは95~98であるホモポリマーポリプロピレンであるか、またはエチレンおよび/または α -オレフィン $\text{CH}_2=\text{CHR}$ （但し、Rは2~6個の炭素原子を有するアルキル基である）との結晶性プ

- 7 -

ロピレンコポリマーであって、85重量%を上回るプロピレンを含み且つアイソタクチック指数が85を上回るものを10~80重量部、好ましくは20~50重量部、

(B) エチレンを含む、室温でキシレンに不溶性のポリマー成分を10~40重量部、および

(C) 所望によりジエンを少量含み、室温でキシレンに可溶性であり且つエチレンを40~70重量%含む非品質のエチレン-プロピレンコポリマー成分を80~80重量部、好ましくは80~50重量部。

重合したエチレンの総含量は、20~80重量%である。

各成分の（テトラヒドロナフタレン中135℃で極限粘度を測定することによって決定した）分子量は、成分の性質および最終製品のメルトインデックスに依存して変化する。下記の範囲が好ましい。

成分(A)は0.5~3 dl/g。

成分(B) プラス(C)は2~8 dl/g。

前記の組成物は、平均直径が500~7000 μm であ

- 8 -

り、(70℃での)流動性が80秒未満であり、(充填した)高密度が0.4 g/ccを上回り、特に0.4~0.8 g/ccである長球状粒子の形態で得られる。

組成物は、示差走査熱量分析法(DSC)で測定すると、140℃を上回る温度で少なくとも1個の融解ピークを示し、曲げ弾性率は700 Npa未満、好ましくは200~800 Npaであり、ビカー軟化点は、50℃を上回り、ショアーA硬度は80を上回り且つショアーD硬度は80を上回り、75%での残留伸びは80%未満、特に20~50%であり、引張応力は6 Npaを上回り、特に8~20 Npaである。

組成物の電子顕微鏡下の分析は、分散相が非晶質のエチレン-プロピレンコポリマーから成り、平均粒度が2 μm 未満であることを示す。

この組成物から得ることができる製品は、特に自動車、電気ケーブルおよびスポーツ用品の分野で用いられる。

組成物は、少なくとも2段階からなる重合法で製造し、第一段階ではプロピレンを重合させて成分(A)を形成し、次の段階でエチレン-プロピレ

- 9 -

- 10 -

ン混合物を重合させて成分(B) および(C) を形成する。

操作は、液または気相中でまたは液-気相中で行なう。

好ましい方法は、プロピレンのホモ重合段階を、稀釈剤として液状プロピレンを用いて行ない、プロピレンとエチレンの気相中での共重合段階を、プロピレンの部分的なガス抜きをする外には中間の段階なしに行なうことである。

プロピレンの重合は、エチレンまたは α -オレフィン例えばブテン-1、ペンテン-1、4-メチルペンテン-1の、生成する製品のアイソクチック指数が85%を上回るような量の存在下で行なうことができる。

プロピレンとエチレンの共重合はまた、他の α -オレフィンまたは共役した若しくは共役していないジエン例えばブタジエン、1, 4-ヘキサジエン、1, 5-ヘキサジエン、エチリデンノルボルネン-1の存在下で行なうことができる。

プロピレン重合段階およびプロピレンとエチレ

ンとの共重合段階の反応温度は、同じであるかまたは異なってもよく、一般的には40℃～80℃、好ましくはホモ重合の場合は50～80℃、共重合の場合は50～70℃である。

第一段階の圧力は、使用温度で液状プロピレンの蒸気圧に相当する圧力であり、触媒混合物を供給するのに用いる少量の不活性稀釈剤の蒸気圧および分子量の調節剤として用いる水素の過剰圧力によって調節可能である。

共重合段階に関する圧力は、気相中に行なう場合は、5～80 atmであることができる。二つの段階に関する滞留時間は、ホモポリマーAと、ポリマーBおよびC割合との所望な関係によって変化し、一般的には30分間～8時間である。水素およびZnEt₂のような従来の既知の連鎖移動剤は、分子量調節剤として用いることができる。

重合に用いる触媒は、酸化マグネシウム上に担持されたチタン化合物および電子供与体化合物(内部供与体)を含む固体化合物と、トリアルキルアルミニウム化合物および電子供与体化合物

- 11 -

(外部供与体)との反応生成物を包含する。

本発明の組成物を、高密度が高い流動性粒子の形態で得るためには、固体の触媒成分が下記の特徴を示すことが重要である。

表面積が100 m²/g未満、特に50～80 m²/g。

多孔度が0.25～0.4 cc/g。

X線スペクトルは、角度2 θ が88.5°～95°でハロを示し、2 θ が14.95°で反射を示さない。

触媒成分は、下記の方法にしたがって製造する。

一般的にMgCl₂のモル当たり3モルのアルコールを含むアルコールとの塩化マグネシウム付加物は、溶融付加物を付加物と混和しない不活性炭化水素液に乳化させた後、エマルジョンを速やかに冷却して付加物を球状粒子の形態に凝固させることによって球状粒子の形態で得られる。

次に、粒子は、50℃～130℃の加熱サイクルで部分的な脱アルコールを施され、MgCl₂のモル当たり3モルのアルコール含量を1～1.5モルにする。

次いで、付加物は、濃度40～50 g/lの冷却した

- 12 -

TiCl₄に懸濁し、その後温度を80℃～135℃とし、1～2時間この温度に保持する。

アルキル、シクロアルキルまたはアリールフタレート例えばジイソブチル、ジ-n-ブチルおよびジ-n-オクチルフタレートから好ましく選択される電子供与体化合物も、TiCl₄に加える。

過剰のTiCl₄は、濾過または沈降によって熱いうちに分離し、TiCl₄による処理を1回以上繰り返した後、固体はヘプタンまたはヘキサンで洗浄して乾燥させる。

このようにして得られる触媒成分は、下記の特徴を示す。

表面積：100 m²/g未満、特に50～80 m²/g。

多孔度：0.25～0.4 cc/g。

50%を上回る孔の半径が100 Åを上回るような細孔容積分布。

X線スペクトルは、角度2 θ が88.5°～95°で最大強度を有するハロを示し、2 θ が14.95°では反射を示さない。

触媒は、触媒成分をトリアルキルアルミニウム

- 13 -

- 14 -

化合物、好ましくはトリエチルアルミニウムおよびトリイソブチルアルミニウム、および電子供与体化合物であって式 $R' R'' S (OR)_2$ (但し、 R' および R'' は同じであるかまたは異なるものであり、1~18個の炭素原子を有するアルキル、シクロアルキルまたはアリール基であり、 R は1~4個の炭素原子を有するアルキル基) であるシラン化合物から好ましく選択される化合物と混合することによって得られる。

典型的なシランは、ジフェニルジメトキシシラン、ジシクロヘキシルジメトキシシラン、メチルヒューブチルジメトキシシランおよびジイソプロピルジメトキシシランである。

フェニルトリエトキシシランのようなシラン化合物も用いることができる。

A1/T1比は、通常10~200であり、シラン/A1モル比は、1/5~1/50である。

触媒は、少量のオレフィンと予備接触させ(初期重合)、炭化水素溶媒の懸濁液に触媒を保持し、室温~60℃の温度で重合させて触媒の重量の

0.5~3倍の量のポリマーを製造することができる。

操作は、液状モノマーでも行なうことができ、この場合触媒重量の最大1000倍までの量のポリマーを製造することができる。

下記に記載の特性に関する実施例および本文に示したデータは、下記の方法を用いて測定した。

特性

方法

流動度指数(M.F.R.L.): ASTM-D 1238

エチレン重量%: 赤外分光法

極限粘度: テトラレン中185℃で測定

キシレン可溶性重量%: (実施例の前の注記を参照されたい)

曲げ弾性率: ASTM-D 790

ノッチ付アイゾットレジリエンス:

ASTM-D 256

ビカー(1 kg)軟化点: ASTM-D 1525

A/D ショアー硬度: ASTM-D 2240

75%での残留伸び: ASTM-D 412

引張応力: ASTM-D 888

- 15 -

表面積: B.E.T.

多孔度: B.E.T.

高密度: DIN-58194

流動性: ポリマー100 gが漏斗を通過するのに要する時間であって、開口部の直径1.27 cm、壁が垂直に対して20°で傾斜した漏斗の押出量。

粒度測定: ASTM-D 1921-63

白化耐性: 直径12.7 mm、秤量78 gの半球形状パンチから成るラムでの圧入によって得られる試験用のポリマーのディスクに衝撃を施すことによって測定した。白化を生じる最小の高度(h)と、装置によって許される最大高度(78 cm)での白化する面積の大きさを測定した。

様々な物理化学的な試験を施す試料は、あらかじめイルガノクス(IGRANOX)® 1010を0.1重量%とBHT(2, 6-ジ-tert-ブチル-パラクレゾール)0.1重量%とで安定化した球状粒子の形態のポリマー中から、下記の条件下でGBP V180注入圧力を用いて直接成形している。

ポリマーの熔融温度190℃、

- 17 -

- 16 -

成形温度80℃、

注入時間20秒間、

冷却時間25秒間。

全ポリマーの重量% ($\% B_p = \% C + \% B$) は、第二段階で供給されるプロピレン-エチレン混合物の重量を測定することによって計算し、最終製品の重量と比較する。

本分中に記載の三つの面分A、BおよびCの重量%は、下記の方法で測定する。

$$\% A = 100 - \% B_p$$

$$\% C = S_c - P \cdot S_p$$

(式中、 S_c および S_p は、最終製品およびポリプロピレン面分Aそれぞれのキシレン可溶性部分の重量%であり、Pは前記の面分と最終製品との重量比である)

$$\% B = 100 - \% A - \% C$$

キシレンに可溶性のコポリマー面分Cに含まれるエチレンの重量%は、下記の式で計算されている。

- 18 -

$$\text{百分C中のエチレン\%} = \frac{C_P - C_P \cdot Q}{Y}$$

(式中、 C_P は、最終製品のキシレンに可溶性部分中のエチレン重量%であり、

C_P は、ポリプロピレン百分Aのキシレンに可溶性部分中のエチレン重量%であり、

Qは、最終製品に対するAの重量百分を乗じ、最終製品のキシレン可溶性部分の重量百分で割った百分Aのキシレン可溶性部分の重量%であり、

Yは、全ポリマー重量%を乗じて100で割ったCの重量%である。

注記

キシレン可溶性部分の百分率の測定

ポリマー2.5 gをキシレン250 mlに135℃で攪拌しながら溶解させる。20分後に、溶液を攪拌を継続しながら25℃まで冷却した後、80分間静置する。沈殿物を濾紙で濾過し、溶液は窒素流中で蒸発させ、残留物は恒量に達するまで真空下80℃で乾燥させる。この方法で、室温でキシレンに可溶性のポリマーの重量%を計算する。室温でキシレ

ンに不溶性のポリマーの重量%を、ポリマーのアイソタクチック指数と見なす。このようにして得られる値は、沸騰n-ヘプタンで抽出することによって測定したアイソタクチック指数と実質的に一致し、定義によりポリプロピレンのアイソタクチック指数に等しい。

実施例

一般的な操作方法

試験は、22 lのステンレス鋼オートクレーブ中で、ヘリカル・マグネチック・スターラーを約90 rpmで操作して行なった。

温度および圧力は、特に断らない限り反応中一定に保つ。

気相は、処理用ガスクロマトグラフィ装置で連続的に分析する。

操作は、2段階の回分操作であり、第一段階は、液状モノマー中のプロピレンのホモ重合から成り、第二段階は、気相中でのエチレンとプロピレンとの共重合から成る。

- 19 -

(A) 第一段階

オートクレーブに、20℃で、液状プロピレンを18リットルを加え、固体成分(約0.15g)と、ヘキサン中10%トリエチルアルミニウム(TBAL)を75mlとフェニルトリエトキシシラン(PES)(モル比Al/PESが10)の適当量との混合物から成る触媒コンプレックスを順に入れる。

触媒系は、プロピレンの圧力で供給する。温度を約10分間で70℃まで上昇させ、重合が完全に終了するまで一定に保つ。水素は、気相中で連続的に定量分析し、所望の濃度を一定に保持するために供給する。エチレンをコモノマーとして用いるときは、このオレフィンの適当量を連続的に供給して気相中の百分率を一定に保持する。

所定時間後、ほぼ全量の残留モノマーを80℃、大気圧でガス抜きすることによって除去する。

(B) 第二段階

第一段階からのホモポリマーは、各種の分析用試料を採取した後、所定の温度に上昇させる。続いて、プロピレンとエチレンを所望な量の比で順

- 20 -

に供給して設定した気相組成物および圧力を得る。

重合時の圧力は、所望のポリマーと同様の組成物を有し、90℃のサーモスタットを備えるシリンドー内に入れられたエチレン-プロピレン混合物を供給することによって一定に保持する。

供給時間は、触媒系の反応と、計画したホモおよびポリマーの相対組成を供給するのに必要なポリマーの量とによって変化する。試験終了時に、粉末を排出し、安定化して窒素流中60℃でオープン乾燥する。用いた触媒成分は、米国特許第4,389,064号明細書の実施例2の方法にしたがって行なうが、10,000 rpmの代わりに3,000 rpmで行なって球状粒子の形態で得られる $MgCl_2 \cdot 3C_2H_5OH$ 付加物から製造する。次に、付加物は、窒素流中温度50℃~100℃まで徐々に上昇させて加熱することによってアルコール含量が $MgCl_2$ のモル当たり1.5モルに達するまで脱アルコールを行なう。

部分的に脱アルコールした付加物は、表面積が9.1 m²/gであり、嵩密度が0.584 g/ccである。

- 21 -

-414-

- 22 -

前記の付加物25gをTIC14625 mlに0℃で攪拌しながら加える。

1時間で100℃まで加熱する。温度が40℃になったときにジイソブチルフタレートにMg/ジイソブチルフタレートのモル比8で加える。2時間で100℃まで加熱し、静置させた後、液体は熱いうちに吸引する。TIC14550 mlを導入し、120℃で1時間加熱する。次に静置させた後、液体を熱いうちに吸引する。固形物は、無水ヘキサン200 mlを用いて60℃で6回洗浄した後、室温で3回洗浄する。真空中で乾燥後の固形物は、下記の特性を示す。

多孔度=0.261 cc/g、

表面積=88.5m²/g、

高密度=0.440 g/cc。

実施した全ての試験および相対的な操作条件は、表-1Aおよび1Bに示す。

実施例2および4において、外部供与体としてフェニルトリエトキシシランの代わりにジフェニルジメトキシシランを用いた。

表-1A

実施例		1	2	3	4
第一段階					
圧力	Atm	88.4	30.4	85.6	81.2
時間	分	90	80	80	80
気相中のH ₂	%モル	14.1	0.8	11.9	1.7
気相中のC ₂	%モル	-	-	-	1.55
アイソクチック指数	重量%	94.6	95.8	95.2	94.7
極限粘度	dl/g	0.88	1.88	0.86	1.86
エチレン	重量%	-	-	-	2.8
キシレン可溶性部分中のエチレン	重量%	-	-	-	12.1
第二段階					
温度	℃	60.0	70	80	70
圧力	Atm	12.0	11.8	11.8	11.8
時間	分	215	850	870	405
気相中のH ₂	%モル	0.4	1.0	2.05	1.1
気相中のC ₂	%モル	29.1	85.2	51.1	83.9
供給する混合物中のC ₂ /C ₃	wt/wt	45/55	55/45	70/30	51/49

- 23 -

表-1B

実施例		1	2	3	4
最終製品					
収率	kgポリマー/gTI	851	1230	933	1880
ヒポリマー(Bp)	重量%	58.8	78.4	78.2	57.4
エチレン	重量%	80.1	41.5	55.1	29.3
極限粘度	dl/g	1.88	2.88	2.44	1.95
流動性指数	g/10'	18.0	1.28	2.7	4.0
キシレン可溶性部分(Sc)重量%		42.5	42.7	44.2	86.5
画分B	重量%	16.2	84.8	88.0	21.8
画分C	重量%	40.1	41.8	40.2	85.8
キシレン可溶性部分中のC ₂ (CP)	重量%	42.5	52.1	58.8	44.8
画分C中のC ₂	重量%	45.0	58.8	67.5	47.1
融点(DSC)	℃	183	183.5	183	148
曲げ弾性率	Mpa	850	820	270	800
ノッチ付アイゾット					
レジリエンス(c.i.)-40	J/m	N.B.	N.B.	980	N.B.
白化耐性(高さ)	cm	>78	>78	>78	>73
白化耐性(面積)	cm	0	0	0	0

- 25 -

- 24 -

ビカー(1 kg)	℃	84	85	78	97
ショア-A硬度		97	94	91	95
ショア-D硬度		45	42	38	46
75%での残留伸び	%	48	40	37	40
引張応力(牽引)	Mpa	8.1	12.1	11.7	15.6
充填した濃密度	kg/l	0.47	0.48	0.48	0.47
70℃での流動性	秒	11	11	12	14
顆粒の平均直径	μm	1400	2000	1400	2000

N. B. は「破損しない」である。

本明細書に開示された本発明の他の特徴、利点および実施態様は、前記の開示を読んだ後に当該技術者に容易に明らかになるであろう。また、本発明の具体的な実施態様はかなり詳細に記載されているが、これらの実施態様の変更および改良も、本発明の趣旨および範囲に反しない限り行うことができる。

出願人代理人 佐藤 一 雄

- 26 -